

# IMPROVED DIAPHRAGM ELECTRODE UNIT FOR A PEM FUEL CELL AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

Patent number: WO0026982

Publication date: 2000-05-11

Inventor: DENNERLEIN KLAUS (DE); GEBHARDT ULRICH (DE)

Applicant: SIEMENS AG (DE); DENNERLEIN KLAUS (DE); GEBHARDT ULRICH (DE)

Classification:

- international: H01M8/10; H01M4/88

- european: C25B9/10; H01M8/10B2

Application number: WO1999DE03319 19991015

Priority number(s): DE19981050119 19981030

Also published as:



WO0026982 (A3)

Cited documents:



WO9723916

US4272353

DE3036066

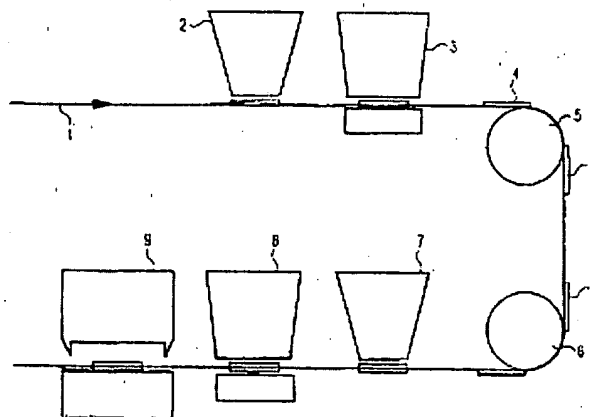
WO9723919

GB1163149

more >>

## Abstract of WO0026982

The invention relates to a membrane electrode unit for a PEM fuel cell, whereby the active electrode catalyst layer is directly pressed onto the diaphragm in the form of a dry powder. The invention also relates to a low-cost mass production method for said diaphragm electrode unit (ME), whereby the dry catalyst powder is applied to the diaphragm strip using a sieve and is then processed without an additive using a press to form an electrode catalyst layer.



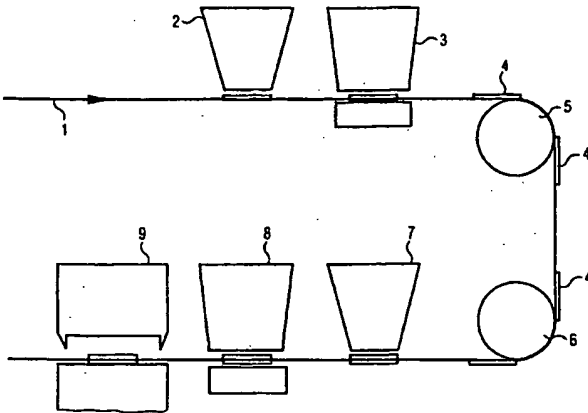
Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> : H01M 8/10, 4/88		A2	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/26982
		(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:	11. Mai 2000 (11.05.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/03319 (22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)  (30) Prioritätsdaten: 198 50 119.6 30. Oktober 1998 (30.10.98) DE  (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).  (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DENNERLEIN, Klaus [DE/DE]; Oppelner Str. 11, D-91058 Erlangen (DE). GEBHARDT, Ulrich [DE/DE]; Zedemstr. 18, D-91094 Langensendelbach (DE).  (74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE- SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  Veröffentlicht <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i>	
(54) Title: IMPROVED DIAPHRAGM ELECTRODE UNIT FOR A PEM FUEL CELL AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF			
(54) Bezeichnung: VERBESSERTE MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT FÜR EINE PEM-BRENNSTOFFZELLE UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG			
			
(57) Abstract			
<p>The invention relates to a membrane electrode unit for a PEM fuel cell, whereby the active electrode catalyst layer is directly pressed onto the diaphragm in the form of a dry powder. The invention also relates to a low-cost mass production method for said diaphragm electrode unit (ME), whereby the dry catalyst powder is applied to the diaphragm strip using a sieve and is then processed without an additive using a press to form an electrode catalyst layer.</p>			

# (57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft eine Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht als trockenes Pulver direkt auf die Membran aufgespreßt ist. Ausserdem betrifft die Erfindung ein kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Herstellungsverfahren für diese Membran-Elektroden-Einheit (ME), bei dem das trockene Katalysatorpulver einfach mit einem Sieb auf das Membranband aufgebracht wird und dann ohne ein Additiv mit einer Presse zu einer Elektrodenkatalysatorschicht verarbeitet wird.

## LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshjan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

## Beschreibung

Verbesserte Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle und Verfahren zu ihrer Herstellung

5

Die Erfindung betrifft eine Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht als trockenes Pulver direkt auf die Membran aufgepresst ist. Außerdem betrifft die Erfindung ein kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Herstellungsverfahren für diese Membran-Elektroden-Einheit (ME).

10

Bekannt sind ME bei denen der Katalysator als Paste oder Tinte, also unter Zusatz von einem Additiv wie einem Verlaufshilfsmittel, direkt auf die Membran durch Besprühen, Walzen oder mittels Siebdruck aufgebracht ist. Nachteilig an diesen ME ist, daß das Additiv später die Aktivität der Elektrodenkatalysatorschicht beeinträchtigt und ihren Innenwiderstand erhöht, insbesondere wenn es nicht rückstandsfrei entfernt wurde. Außerdem führt ein Additiv immer zur Quellung der Membran und stört damit deren Dimensionsstabilität.

15

20

Bekannt sind auch ME, bei denen der Katalysator auf eine Gasleitschicht zwischen die Membran und die aktive Elektrodenkatalysatorschicht aufgebracht ist. Dabei lagert sich ein nicht unbeträchtlicher Anteil an Elektrodenkatalysator in den Poren der Gasleitschicht ein, der dann nicht mehr katalytisch wirksam ist.

25

Aus der DE 195 09 749 A1 ist ein Verfahren zur Herstellung einer ME bekannt, bei dem das trockene Katalysatorpulver zunächst auf einen Träger aufgebracht und mit diesem dann mit der Membran verpreßt wird. Nachteilig an diesem Verfahren ist erstens, daß ein Träger in die ME eingebaut wird, was einen zusätzlichen Arbeitsschritt bei der Herstellung und einen zusätzlichen Widerstand in der ME nach sich zieht und zweitens, daß die Oberfläche der aktiven Katalysatorschicht durch das

30

35

Anpressen der Katalysator-Trägerschicht in bezug auf Porengröße, Volumenkonzentration und/oder Porosität festgelegt ist.

- 5 Die bislang bekannten ME verfügen demnach über einen hohen Anteil Katalysator, der in der elektrochemischen Zelle oberflächen-unwirksam bleibt, weil er entweder in den Poren der Gasleitschicht eingelagert ist oder in einem Additiv (d.h. einem Verarbeitungs-Hilfsmittel) eingeschlossen ist.

10

- Entsprechend zu den ME sind auch zwei Typen von Herstellungsverfahren für ME bekannt, erstens die direkte Aufbringung des Katalysators als Paste oder Tinte durch ein Sprüh-, Walz- oder Siebdruckverfahren (im folgenden kurz als (1) bezeichnet) und zweitens die Aufbringung und Verpressung des Katalysators auf eine Gasleitschicht, die ihrerseits an die Membran anschließt (2).

15

- Beide Verfahren haben den Nachteil, daß sie mehr als einen Arbeitsabschnitt zur Herstellung einer ME brauchen, wie z.B. bei Verfahren (1):

20

- Herstellung der Paste
  - Aufbringung der Paste auf die Membran
  - Regeneration des Katalysators aus der Paste (wobei die
- 25 Teilschritte nicht zwangsläufig nur einen Arbeitsschritt umfassen)

oder bei Verfahren (2)

- Verbindung der fertigen Gasleitschicht mit der Membran,
- Aufbringung des Katalysators auf der Gasleitschicht.

30

- Als "Arbeitsabschnitt" (z.B. Herstellung der Paste) wird die Herstellung eines Zwischenproduktes bezeichnet, wohingegen als "Arbeitsschritt" (z.B. Trocknen der aufgetragenen Schicht) ein Prozeßschritt eines Verfahrens bezeichnet wird,
- 35 der nicht zwangsläufig zu einem Zwischenprodukt führt.

Aufgabe der Erfindung ist es daher, die Ausnutzung oder Oberflächenwirksamkeit des Katalysators auf der ME und seine elektrochemische Anbindung zu optimieren und ein einfaches (d.h. nur einen Arbeitsabschnitt umfassendes), kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Verfahren zur Herstellung einer ME mit optimierter Katalysatorausnutzung zur Verfügung zu stellen.

Diese Aufgabe wird durch eine Membran-Elektroden-Einheit, eine Membran mit beidseitig einer aktiven Elektrodenkatalysatorschicht umfassend, gelöst, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht frei von Additiven ist und direkt auf die Membran aufgebracht ist. Außerdem ist Gegenstand der Erfindung ein Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung einer Membran-Elektroden-Einheit, folgende Arbeitsschritte umfassend:

- Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf das Membranband,
- Aufpressen des Katalysatorpulvers und
- Abschneiden der fertigen Membran-Elektroden-Einheiten.

Bei der Ausgestaltung der Erfindung, die eine Nafion-15™ einer Dicke von etwa 130-140  $\mu\text{m}$  als Membran haben, läßt sich die Verringerung des Innenwiderstandes durch den Einsatz der Erfindung bei der Herstellung der ME auf ca. 15% schätzen. Der Innenwiderstand beträgt bei den herkömmlich mit dieser Membran hergestellten ME ungefähr  $130 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$  und verringert sich bei Anwendung der Erfindung entsprechend auf ca.  $110 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ .

Eine Ausführungsform des Verfahrens ist, daß in einem kontinuierlichen Verfahren zunächst eine Seite der Membran mit Katalysator belegt wird, dann das Membranband über Umlenkrollen gewendet wird, bevor die andere Seite mit Katalysator belegt wird.

Vorteilhafterweise wird der Katalysator mit einem Sieb auf das Membranband aufgerüttelt. Durch die Kontur des Siebes, wie z.B. eckig, insbesondere rechteckig oder quadratisch, wird dabei die geometrische Abmessung der Kathode und/oder Anode realisiert.

Bei einer weiteren Ausführungsform des Verfahrens wird durch ein zusätzliches Sieb eine Fraktionierung des Katalysators möglich. Dadurch kann eine ME mit Schichtaufbau bzgl. Volumenkonzentration und/oder Porosität des Elektrodenkatalysators realisiert werden.

Durch den Einsatz verschiedener Siebe kann eine unterschiedliche Struktur der Oberfläche der aktiven Katalysatorschicht realisierbar sein. Dabei ist die Porosität bewirkt durch Porenstruktur, Porengröße und/oder Volumenkonzentration variabel je nach Anforderung gestaltbar.

Ein Katalysatorträger kann nach der Herstellung auf die ME aufgebracht werden.

Bei einer vorteilhaften Ausführungsform des Verfahrens wird das Membranband während der Bearbeitung feucht gehalten. Dies kann z.B. durch Sprühvorrichtungen und/oder Wasserfilme erfolgen. Vorteilhaft dabei ist, daß die feuchte Membran eine konstante Form hat, die sie auch beim Betrieb in der elektrochemischen Zelle hat. Deshalb ist Dimensionsstabilität gegeben und es müssen keine Volumenänderungen durch Quellung oder Trocknung (wie das bei den bekannten Verfahren, die etliche Temper- und/oder Trocknungsschritte während der Herstellung unterlaufen, der Fall ist) einkalkuliert werden.

Bei einer anderen vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist der Katalysator, z.B. der Pt-Katalysator, entsprechend seiner Anforderung (Kathode oder Anode etc.) vorbehandelt worden. So können z.B. hydrophobe Katalysatoren wie tefloni-

sierte und/oder nafionisierte Pt-Katalysatoren zum Einsatz kommen.

Im folgenden wird das Verfahren noch anhand eines Ausführungsbeispiels näher erläutert:

Die einzige Figur zeigt schematisch die einzelnen Arbeitsschritte:

- 10 Von links kommt das Membranband 1 unter das erste Sieb 2, in dem, evtl. vorbehandeltes, trockenes Katalysatorpulver ist. Durch das Sieb 2 wird je nach Verweilzeit und Rüttelintensität eine vorbestimmte Menge des trockenen Katalysatorpulvers auf das Membranband aufgebracht. Nach der Belegung mit Katalysatorpulver wird durch die Presse 3 die Elektrodenkatalysatorschicht auf dem Membranband 1 hergestellt. Das Membranband 1 mit der fertigen Elektrodenkatalysatorschicht 4 wird dann über die Umlenkrollen 5 und 6 umgedreht, so daß die andere, noch unbelegte Seite des Membranbandes 1 unter das zweite
- 20 Sieb 7 zu liegen kommt. Dort wird wieder ein u.U. vorbehandeltes und trockenes Katalysatorpulver, in einer durch Verweilzeit und Rüttelintensität einstellbaren Menge auf die Membran 1 aufgebracht. Durch die Presse 8 entsteht wieder eine fertige Elektrodenkatalysatorschicht auf dem Membranband
- 25 1. Am Ende des Verfahrens wird nur noch mit der Stanze 9 aus dem Membranband 1 eine fertige ME ausgestanzt.

Die Erfindung beschreibt eine einfache Bandfertigung von ME. Durch die Aufbringung des trockenen Katalysatorpulvers mit

30 einem Sieb auf die Membran wird eine optimale elektrolytische Anbindung des Katalysators an die Membran erreicht, die eine Verringerung des Innenwiderstandes der ME in der elektrochemischen Zelle zur Folge hat.

35 Mit dem Verfahren ist es möglich, die Membran während der Bearbeitung ohne großen Aufwand feucht zu halten.



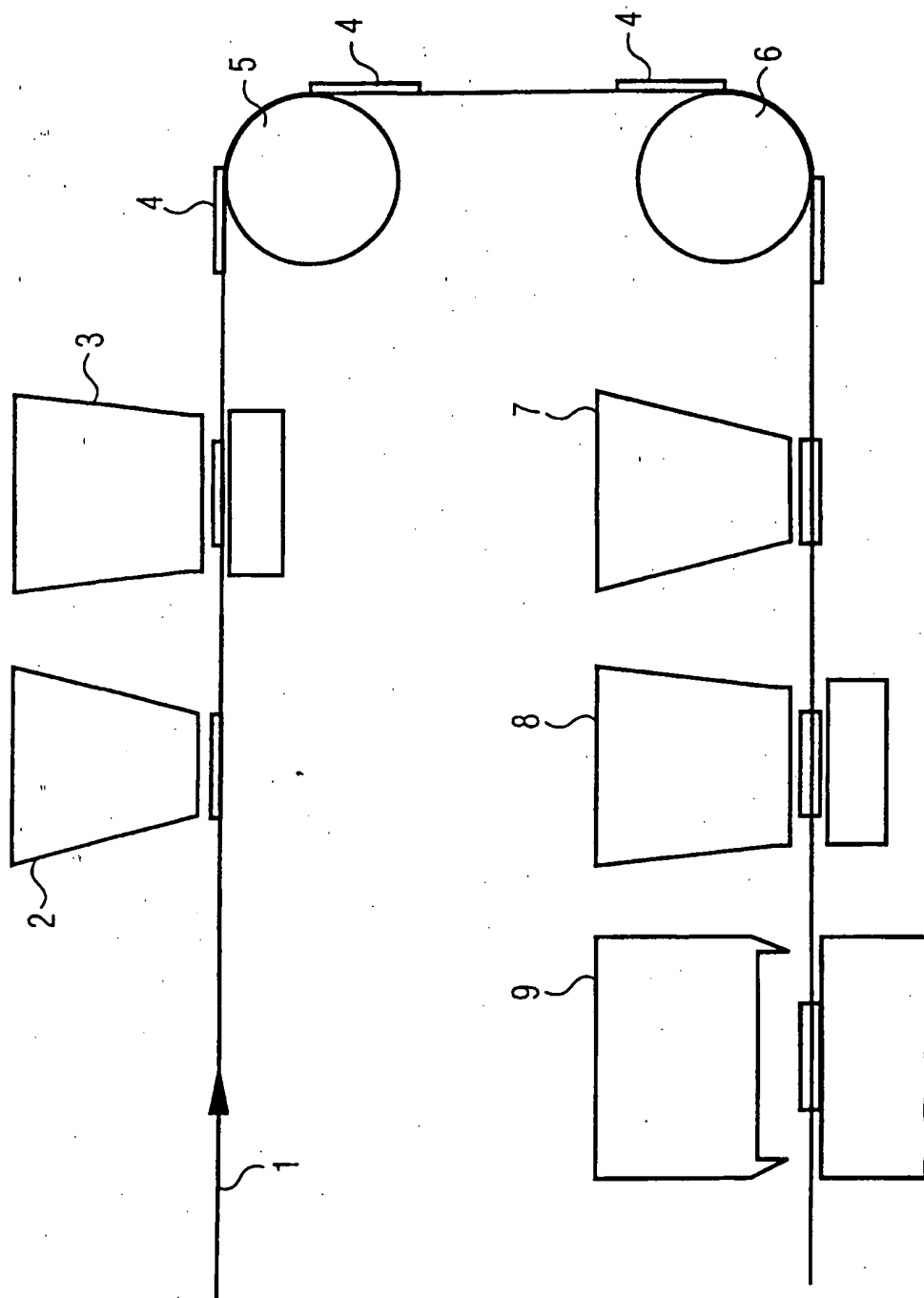
## Patentansprüche

1. Membran-Elektroden-Einheit, eine Membran und beidseitig eine aktive Elektrodenkatalysatorschicht umfassend, bei der  
5 die aktive Elektrodenkatalysatorschicht frei von Additiven ist und direkt auf die Membran aufgebracht ist.
2. Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung einer Membran-Elektroden-Einheit, folgende Arbeitsschritte umfassend:  
10 - Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf das Membranband,  
- Aufpressen des Katalysatorpulvers und  
- Abschneiden der fertigen Membran-Elektroden-Einheiten.
- 15 3. Verfahren nach Anspruch 2, folgende Schritte umfassend:  
- Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf die erste Seite des Membranbandes,  
- Aufpressen des Katalysatorpulvers,  
- Wenden des Membranbandes über Umlenkrollen,  
20 - Aufbringen von trockenem Katalysatorpulver auf die andere Seite des Membranbandes,  
- Aufpressen des Katalysatorpulvers und  
- Abschneiden der fertigen Membran-Elektroden-Einheit.
- 25 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 oder 3, bei dem das trockene Katalysatorpulver durch ein Sieb auf das Membranband aufgerüttelt wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 4, bei dem das  
30 Membranband während der Verarbeitung feucht gehalten wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 5, bei dem über ein zusätzliches Sieb der Katalysator fraktioniert aufgebracht wird, so daß ein Schichtaufbau der Elektrodenkatalysatorschicht realisiert wird.  
35

7

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 6, bei dem das Katalysatorpulver vor seiner Aufbringung vorbehandelt wurde.

1/1



PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7 :

H01M 8/10, 4/88, C25B 9/00

A3

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/26982

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

11. Mai 2000 (11.05.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE99/03319

(22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 50 119.6

30. Oktober 1998 (30.10.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS  
AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2,  
D-80333 München (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DENNERLEIN, Klaus  
[DE/DE]; Oppelner Str. 11, D-91058 Erlangen (DE).  
GEBHARDT, Ulrich [DE/DE]; Zedernstr. 18, D-91094  
Langensendelbach (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE-  
SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München  
(DE).

(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, JP, US, europäisches Patent  
(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,  
LU, MC, NL, PT, SE).

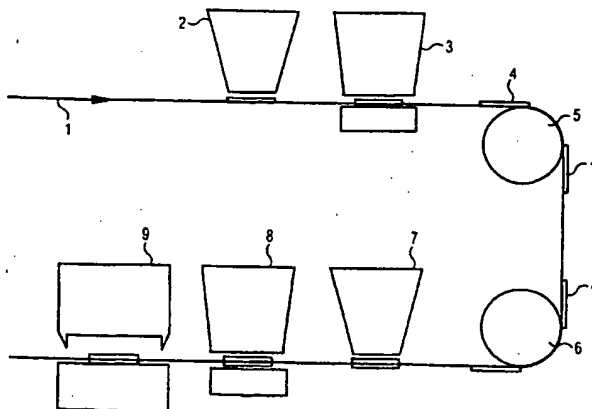
Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenbe-  
richts: 21. September 2000 (21.09.00)

(54) Title: MEMBRANE ELECTRODE UNIT FOR A PEM FUEL CELL AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT FÜR EINE PEM-BRENNSTOFFZELLE UND VERFAHREN ZU IHRER  
HERSTELLUNG



(57) Abstract

The invention relates to a membrane electrode unit for a PEM fuel cell, whereby the active electrode catalyst layer is directly pressed onto the membrane in the form of a dry powder. The invention also relates to a low-cost mass production method for said membrane electrode unit (ME), whereby the dry catalyst powder is applied to the membrane strip using a sieve (2, 7) and is then processed without an additive using a press (3, 8) to form an electrode catalyst layer (4).

**(57) Zusammenfassung**

Eine Membran-Elektroden-Einheit für eine PEM-Brennstoffzelle, bei der die aktive Elektrodenkatalysatorschicht als trockenes Pulver direkt auf die Membran aufgespritzt ist. Außerdem betrifft die Erfindung ein kostengünstiges und massenfertigungstaugliches Herstellungsverfahren für diese Membran-Elektroden-Einheit (ME), bei dem das trockene Katalysatorpulver einfach mit einem Sieb (2, 7) auf das Membranband (1) aufgebracht wird und dann ohne ein Additiv mit einer Presse (3, 8) zu einer Elektrodenkatalysatorschicht (4) verarbeitet wird.

**LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/DE 99/03319

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01M8/10 H01M4/88 C25B9/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M C25B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 97 23916 A (HOECHST AG ;CLAUSS JOACHIM (DE); BOENSEL HARALD (DE); DECKERS GREG) 3 July 1997 (1997-07-03) page 7, paragraph 2 - last paragraph page 9, paragraph 1 page 11, paragraph 4 page 18, paragraph 2 page 18, last paragraph -page 19, paragraph 3; figure 5 page 20, line 8 - line 11 page 26, paragraph 2 - paragraph 3; figures 9,10 claims 16,19,32,39	1-3,5,7
Y	---	4
	-/-	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 April 2000

Date of mailing of the international search report

08/05/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/03319

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 272 353 A (LAWRANCE RICHARD J ET AL) 9 June 1981 (1981-06-09) column 2, line 15 - line 26 column 9, line 8 - line 11 column 9, line 42 - line 55 column 10, line 6 - line 11 column 1, line 6 - line 13	1,2
Y	---	4
X	DE 30 36 066 A (HOECHST AG) 6 May 1982 (1982-05-06) page 9, line 20 - line 37; claim 1 page 10, line 33 - page 11, line 16 page 7, line 26 - page 8, line 9	1
Y	---	3,4
Y	WO 97 23919 A (HOECHST AG ;BOENSEL HARALD (DE); CLAUSS JOACHIM (DE); DECKERS GREG) 3 July 1997 (1997-07-03) claims 1,3,5,25,29; figure 3 page 14, last paragraph	3
X	GB 1 163 149 A (NEDERL. ORG. VOOR T.-NATUURW.-SCHAP. ONDERZOEK T.B.H. N. H. EN V.) 4 September 1969 (1969-09-04) claims 1-3 page 2, line 55 - line 79	1
X	US 3 134 696 A (DAVID L. DOUGLAS ET AL) 26 May 1964 (1964-05-26) column 9, line 51 - line 68	1
X	US 3 134 697 A (LEONARD W NIEDRACH) 26 May 1964 (1964-05-26) column 4, line 46 - line 56; claim 18	1
E	BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7 December 1999 (1999-12-07) claims 1,2; figures 1,2	1,2
P,X	EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30 June 1999 (1999-06-30) column 6, line 35 - column 7, line 4; claims 1,2,13-18; figure 2	2
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30 June 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6 March 1998 (1998-03-06) abstract	2
A	DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2 October 1996 (1996-10-02) cited in the application	

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/03319

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9723916 A	03-07-1997	DE 19548422 A	11-09-1997
US 4272353 A	09-06-1981	JP 1679061 C	13-07-1992
		JP 2004987 B	31-01-1990
		JP 56138874 A	29-10-1981
DE 3036066 A	06-05-1982	NONE	
WO 9723919 A	03-07-1997	DE 19548421 A	11-09-1997
		BR 9612164 A	13-07-1999
		CA 2241022 A	03-07-1997
		CZ 9801959 A	11-11-1998
		EP 0868760 A	07-10-1998
		PL 327288 A	07-12-1998
GB 1163149 A	04-09-1969	NL 6515821 A	07-06-1967
		BE 690720 A	05-06-1967
		FR 1499042 A	10-01-1968
US 3134696 A	26-05-1964	BE 596662 A	
		FR 1285926 A	18-07-1962
		FR 1285927 A	18-07-1962
		GB 894530 A	
		NL 128269 C	
		NL 257579 A	
		US 3134697 A	26-05-1964
US 3134697 A	26-05-1964	BE 596662 A	
		FR 1285926 A	18-07-1962
		FR 1285927 A	18-07-1962
		GB 894530 A	
		NL 128269 C	
		NL 257579 A	
		US 3134696 A	26-05-1964
BE 1011693 A	07-12-1999	NONE	
EP 0926753 A	30-06-1999	DE 19757492 A	01-07-1999
JP 10064574 A	06-03-1998	NONE	
DE 19509749 A	02-10-1996	FR 2731844 A	20-09-1996
		US 5761793 A	09-06-1998



# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int: Nationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/03319

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/10 H01M4/88 C25B9/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M C25B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 97 23916 A (HOECHST AG ;CLAUSS JOACHIM (DE); BOENSEL HARALD (DE); DECKERS GREG) 3. Juli 1997 (1997-07-03) Seite 7, Absatz 2 - letzter Absatz Seite 9, Absatz 1 Seite 11, Absatz 4 Seite 18, Absatz 2 Seite 18, letzter Absatz -Seite 19, Absatz 3; Abbildung 5 Seite 20, Zeile 8 - Zeile 11 Seite 26, Absatz 2 - Absatz 3; Abbildungen 9,10 Ansprüche 16,19,32,39	1-3,5,7
Y	--- -/-	4

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

27. April 2000

Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts

08/05/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/03319

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 272 353 A (LAWRANCE RICHARD J ET AL) 9. Juni 1981 (1981-06-09) Spalte 2, Zeile 15 - Zeile 26 Spalte 9, Zeile 8 - Zeile 11 Spalte 9, Zeile 42 - Zeile 55 Spalte 10, Zeile 6 - Zeile 11 Spalte 1, Zeile 6 - Zeile 13	1,2
Y	---	4
X	DE 30 36 066 A (HOECHST AG) 6. Mai 1982 (1982-05-06) Seite 9, Zeile 20 - Zeile 37; Anspruch 1 Seite 10, Zeile 33 -Seite 11, Zeile 16 Seite 7, Zeile 26 -Seite 8, Zeile 9	1
Y	---	3,4
Y	WO 97 23919 A (HOECHST AG ;BOENSEL HARALD (DE); CLAUSS JOACHIM (DE); DECKERS GREG) 3. Juli 1997 (1997-07-03) Ansprüche 1,3,5,25,29; Abbildung 3 Seite 14, letzter Absatz	3
X	GB 1 163 149 A (NEDERL. ORG. VOOR T.-NATUURW.-SCHAP. ONDERZOEK T.B.H. N. H. EN V.) 4. September 1969 (1969-09-04) Ansprüche 1-3 Seite 2, Zeile 55 - Zeile 79	1
X	US 3 134 696 A (DAVID L. DOUGLAS ET AL) 26. Mai 1964 (1964-05-26) Spalte 9, Zeile 51 - Zeile 68	1
X	US 3 134 697 A (LEONARD W NIEDRACH) 26. Mai 1964 (1964-05-26) Spalte 4, Zeile 46 - Zeile 56; Anspruch 18	1
E	BE 1 011 693 A (ZEVCO BELGIUM BESLOTEN VENNOOT) 7. Dezember 1999 (1999-12-07) Ansprüche 1,2; Abbildungen 1,2	1,2
P,X	EP 0 926 753 A (DEUTSCH ZENTR LUFT & RAUMFAHRT) 30. Juni 1999 (1999-06-30) Spalte 6, Zeile 35 -Spalte 7, Zeile 4; Ansprüche 1,2,13-18; Abbildung 2	2
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 08, 30. Juni 1998 (1998-06-30) -& JP 10 064574 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 6. März 1998 (1998-03-06) Zusammenfassung	2
A	DE 195 09 749 A (DEUTSCHE FORSCH LUFT RAUMFAHRT) 2. Oktober 1996 (1996-10-02) in der Anmeldung erwähnt	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/03319

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9723916 A	03-07-1997	DE 19548422 A	11-09-1997
US 4272353 A	09-06-1981	JP 1679061 C	13-07-1992
		JP 2004987 B	31-01-1990
		JP 56138874 A	29-10-1981
DE 3036066 A	06-05-1982	KEINE	
WO 9723919 A	03-07-1997	DE 19548421 A	11-09-1997
		BR 9612164 A	13-07-1999
		CA 2241022 A	03-07-1997
		CZ 9801959 A	11-11-1998
		EP 0868760 A	07-10-1998
		PL 327288 A	07-12-1998
GB 1163149 A	04-09-1969	NL 6515821 A	07-06-1967
		BE 690720 A	05-06-1967
		FR 1499042 A	10-01-1968
US 3134696 A	26-05-1964	BE 596662 A	
		FR 1285926 A	18-07-1962
		FR 1285927 A	18-07-1962
		GB 894530 A	
		NL 128269 C	
		NL 257579 A	
		US 3134697 A	26-05-1964
US 3134697 A	26-05-1964	BE 596662 A	
		FR 1285926 A	18-07-1962
		FR 1285927 A	18-07-1962
		GB 894530 A	
		NL 128269 C	
		NL 257579 A	
		US 3134696 A	26-05-1964
BE 1011693 A	07-12-1999	KEINE	
EP 0926753 A	30-06-1999	DE 19757492 A	01-07-1999
JP 10064574 A	06-03-1998	KEINE	
DE 19509749 A	02-10-1996	FR 2731844 A	20-09-1996
		US 5761793 A	09-06-1998